

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 15 JUN 2004
WIPO PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 103 17 780.9

Anmeldetag: 16. April 2003

Anmelder/Inhaber: Forschungszentrum Jülich GmbH, 52428 Jülich/DE

Bezeichnung: Kathode für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle
sowie Verfahren zum Betreiben derselben

IPC: H 01 M 4/86

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 4. Juni 2004
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Wehner

Wehner

1

Beschreibung

Kathode für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle sowie Verfahren zum Betreiben derselben

Die Erfindung betrifft eine Kathode für eine Niedertemperatur-Brennstoffzelle, insbesondere für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle, sowie ein vorteilhaftes Verfahren zum Betreiben derselben.

5

Eine Niedertemperatur-Brennstoffzelle, insbesondere eine Polymer-Elektrolyt-Membran- (PEM-) Brennstoffzelle, besteht aus einer Anode und einer Kathode, die durch eine für Ionen durchlässige Polymer-Membran getrennt sind. Dieser Elektrolyt ist ca. 0,1 mm dick. Die gasdichte Membran, die für Wasserstoff und Sauerstoff undurchlässig ist, und auch nicht Elektronen leitend ist, ist in der Regel für Protonen durchlässig. Die Katalysatorschicht weist in der Regel Platin oder Platinlegierungen auf, und wird als dünne, katalytisch wirkende Schicht auf der Membran angeordnet. Die Elektroden weisen eine hohe Porosität und damit eine große Oberfläche auf, die vorteilhaft für die elektrochemischen Umsetzungen zur Verfügung steht. Die elektronisch leitende Diffusionsschicht der Elektroden ist mit den Stromabnehmern verbunden und grenzt direkt an die Katalysatorschicht an. Über die sogenannten bipolaren Platten werden einerseits die Einzelzellen getrennt und anderseits die Betriebsmittel, Brennstoff und Oxidationsmittel, zugeführt. Mit Hilfe geeigneter Verteilerstrukturen werden die Betriebsmittel regelmäßig homogen an die Elektroden herangeführt.

10

15

20

25

Der der Anode zugeführte Wasserstoff setzt sich mit Hilfe des Katalysators elektrochemisch um. Die dabei frei werdenden Elektronen gelangen über Stromabnehmer in den äußeren Stromkreislauf, während die Protonen durch die Elektrolytmembran zur Kathode diffundieren. Die negativ geladenen Elektrolytionen leiten das Proton weiter, wobei die Ionen selber ortsfest bleiben. An der Katalysatorschicht der Kathode rekombinieren die Sauerstoffionen aus der Luft, die Elektronen aus dem Stromkreislauf sowie die Protonen aus der Membran und erzeugen unter Wärmeentwicklung Wasser. Die Membran auf der Anodenseite ist regelmäßig feucht zu halten, während auf der Kathodenseite das Produktwasser regelmäßig entfernt werden muss.

15

Bei den aus dem Stand der Technik bekannten Niedertemperatur-Brennstoffzellen tritt häufig das Problem auf, dass die Diffusionsschicht der Kathode durch permeiertes oder an der Kathode erzeugtes Wasser derart gefüllt ist (Flooding), dass ein reibungloser Sauerstofftransport bis an die Katalysatorschicht der Kathode nicht mehr gegeben ist. Als Folge daraus werden diese Brennstoffzellen regelmäßig mit einem hohen Überschuss an Sauerstoff gefahren, um die vorgenannten Transporthemmungen für den Sauerstoff zu verringern.

Aufgabe und Lösung

Die Aufgabe der Erfindung ist es, eine Brennstoffzelle zu schaffen, bei der die vorgenannte Massentransporthemmung und das Zulaufen der Kathode mit permeiertem und produziertem Wasser (Flooding) regelmäßig verhin-

dert werden kann.

Die Aufgabe der Erfindung wird gelöst durch eine Brennstoffzelle mit der Gesamtheit an Merkmalen gemäß Hauptanspruch, sowie durch ein Verfahren zum Betreiben dieser Brennstoffzelle gemäß Nebenanspruch. Vorteilhafte Ausgestaltungen der Brennstoffzelle und des Verfahrens finden sich in den jeweils darauf rückbezogenen Ansprüchen.

10

Gegenstand der Erfindung

Die der Erfindung zugrunde liegende Idee basiert darauf, den an der Kathode notwendigen Sauerstoff nicht erst durch die poröse Schicht (Diffusionsschicht) der Kathode bis zur Katalysatorschicht zu führen, da sich diese regelmäßig mit Wasser zusetzt und eine Massentransporthemmung verursacht.

20

Zur Lösung des Problems weist daher die erfindungsgemäße Brennstoffzelle eine Kathode auf, umfassend eine Diffusionsschicht mit einer darauf angeordneten Katalysatorschicht, bei der die Diffusionsschicht direkt an die Ionen leitende Elektrolyt-Membran angrenzt und die dem freien Kathodenraum zugewandte Seite der Katalysatorschicht direkt Sauerstoff zugeführt werden kann.

25

Im Prinzip handelt es sich dabei um ein Vertauschen der bislang üblichen Anordnung der Schichten einer Kathode innerhalb einer Brennstoffzelle. Da bei der erfindungsgemäßen Kathode in der Diffusionsschicht neben dem Elektronentransport nun auch ein Ionentransport statt-

30

Forschungszentrum Jülich GmbH
PT 1.2067/ho-we

15.04.2003

4

findet, weist die Diffusionsschicht ein Ionen leitendes Material auf. Insbesondere weist sie einen hohen Anteil an einer Ionomerphase auf.

Bei der erfindungsgemäßen Kathode kann nur vorteilhaft der gasförmige Sauerstoff, gegebenenfalls über eine Verteilerstruktur, direkt bis an die Katalysatorschicht geführt werden. Die Protonen wandern von der Anode durch die Elektrolyt-Membran und weiter durch die sowohl Elektronen als auch Ionen leitende Diffusionsschicht der Kathode bis zur Katalysatorschicht, wo die elektrochemische Umsetzung erfolgt. Die Elektronen werden über den Stromleiter ebenfalls durch die Elektronen leitende Diffusionsschicht der Kathode bis zur Katalysatorschicht transportiert. Die mit Wasser gefüllte Diffusionsschicht (Flooding) bedeutet nun vorteilhaft keine Transporthemmung mehr für den Sauerstoff. Gleichzeitig kann das Wasser, welches an der Katalysatorschicht erzeugt wird, leicht in den freien Kathodenraum abgeleitet werden und muss nicht mehr, wie beim Stand der Technik vorgesehen, zunächst durch die Diffusionsschicht wandern.

Die erfindungsgemäße Brennstoffzelle bzw. das Verfahren zum Betreiben einer solchen weisen die folgenden Vorteile gegenüber dem Stand der Technik auf:

- Die Katalysatorschicht kann auf einfache Weise ohne weitere Stofftransporthemmungen mit Sauerstoff versorgt werden.
- Das an der Katalysatorschicht gebildete Wasser kann zusammen mit dem permeierten Wasser leichter aus dem Kathodenraum ausgetragen werden, da es direkt in den

freien Kathodenraum abfließen kann und nicht erst durch ein poröses Material wandern muss.

5 Spezieller Beschreibungsteil

Nachfolgend wird der Gegenstand der Erfindung anhand von zwei Figuren und einem Ausführungsbeispiel näher erläutert, ohne dass der Gegenstand der Erfindung dadurch beschränkt wird.

10

Legende zu den Figuren:

1 Ionen leitende Elektrolytmembran

2 Anode:

15 2a elektrisch leitende Diffusionsschicht

2b Katalysatorschicht

2c freier Anodenraum, ggfs. mit Verteilerstruktur

3 Kathode:

20 3a elektrisch leitende Diffusionsschicht

3b Katalysatorschicht

3c freier Kathodenraum, ggfs. mit Verteilerstruktur

4 Stromabnehmer

25

Figur 1 zeigt den schematischen Aufbau einer Brennstoffzelle gemäß dem Stand der Technik, bei dem die Katalysatorschicht der Kathode direkt an die Elektrolyt-Membran grenzt.

30

Demgegenüber zeigt die Figur 2 eine erfindungsgemäße Ausführungsform einer Brennstoffzelle mit einer Kathode 3, dessen Diffusionsschicht 3a direkt an die Elektrolyt-Membran 1 angrenzt und die Katalysatorschicht 3b zum freien Kathodenraum 3c weist.

Patentansprüche

1. Niedertemperatur-Brennstoffzelle mit einer Anode, einer Kathode sowie einer dazwischen angeordneten Elektrolytmembran, wobei die Kathode eine Diffusionsschicht und eine darauf angeordnete Katalysatorschicht aufweist,
dadurch gekennzeichnet, dass
die Diffusionsschicht der Kathode direkt an die
Elektrolyt-Membran angrenzt.
- 10 2. Niedertemperatur-Brennstoffzelle nach Anspruch 1,
bei der die Katalysatorschicht der Kathode direkt
an den freien Kathodenraum angrenzt.
- 15 3. Niedertemperatur-Brennstoffzelle nach Anspruch 1
bis 2, bei der die Diffusionsschicht der Kathode
Ionen leitendes, insbesondere Protonen leitendes
Material aufweist.
- 20 4. Verfahren zum Betreiben einer Niedertemperatur-
Brennstoffzelle mit einer Anode, einer Kathode so-
wie einer dazwischen angeordneten Elektrolytmem-
bran, wobei die Kathode eine Diffusionsschicht und
eine darauf angeordnete Katalysatorschicht umfasst,
mit den Schritten
- die auf der Anodenseite erzeugten Protonen wan-
dern durch die Elektrolytmembran und durch die
Diffusionsschicht der Kathode bis zur Katalysa-
torschicht,
- Sauerstoff wird über den freien Kathodenraum di-
rekt bis an die Katalysatorschicht geführt.
- 25
- 30

5. Verfahren nach Anspruch 4, bei dem als Brennstoff Methanol oder eine Methanol-Wassermischung eingesetzt wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 5, bei dem der Sauerstoff als reiner Sauerstoff oder als Luftsauerstoff zugeführt wird.
- 10 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 6, bei dem das an der Katalysatorschicht der Kathode erzeugte Wasser direkt in den freien Kathodenraum abgeführt wird.

Forschungszentrum Jülich GmbH
PT 1.2067/ho-we

15.04.2003

9

Z u s a m m e n f a s s u n g

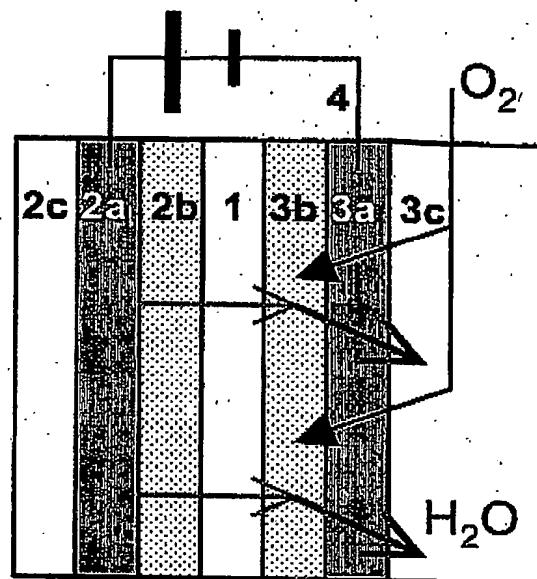
Kathode für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle sowie Verfahren zum Betreiben derselben

Bei den aus dem Stand der Technik bekannten Niedertemperatur-Brennstoffzellen tritt häufig das Problem auf,
dass die Diffusionsschicht der Kathode durch permeiertes oder an der Kathode erzeugtes Wasser derart gefüllt ist, dass ein reibungsloser Sauerstofftransport bis an die Katalysatorschicht der Kathode nicht mehr gegeben ist. Als Folge daraus werden diese Brennstoffzellen regelmäßig mit einem hohen Überschuss an Sauerstoff gefahren, um die vorgenannten Transporthemmungen für den Sauerstoff zu verringern.

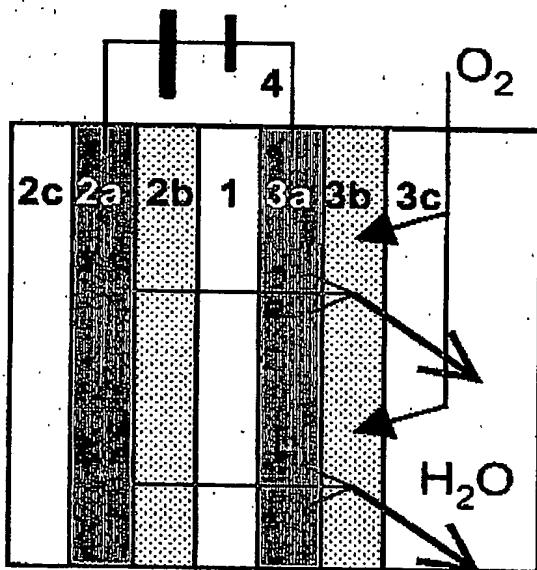
Die erfindungsgemäße Brennstoffzelle löst dieses Problem, indem sie die Diffusionsschicht und die Katalysatorschicht der Kathode in ihrer Anordnung vertauscht. Dabei grenzt die Diffusionsschicht, die nun auch Ionen leitend ausgeführt ist, direkt an die Elektrolytmembran an. Die auf den freien Kathodenraum ausgerichtete Katalysatorschicht kann so vorteilhaft direkt mit dem zugeführten Sauerstoff ohne weitere Transporthemmungen reagieren.

Als weiterer Vorteil lässt sich das an der Katalysatorschicht der Kathode erzeugte und/oder durch die Elektrolyt-Membran und die Diffusionsschicht permeierte Wasser leicht über den freien Kathodenraum abführen.

10



Figur 1



Figur 2

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.